

533, 449

Rec'd PCT/PTO 02 MAY 2005

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004 年 5 月 21 日 (21.05.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/042205 A1(51) 国際特許分類: F01N 3/022, B32B
3/12, C04B 38/00, B01D 39/20, 46/00古屋市 瑞穂区 須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社
内 Aichi (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/014185

(74) 代理人: 渡邊 一平 (WATANABE, Kazuhira); 〒111-
0053 東京都 台東区 浅草橋 3 丁目 20 番 18 号 第
8 菊星タワービル 3 階 Tokyo (JP).

(22) 国際出願日: 2003 年 11 月 7 日 (07.11.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR,
HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI,
NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG,
SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(26) 国際公開の言語: 日本語

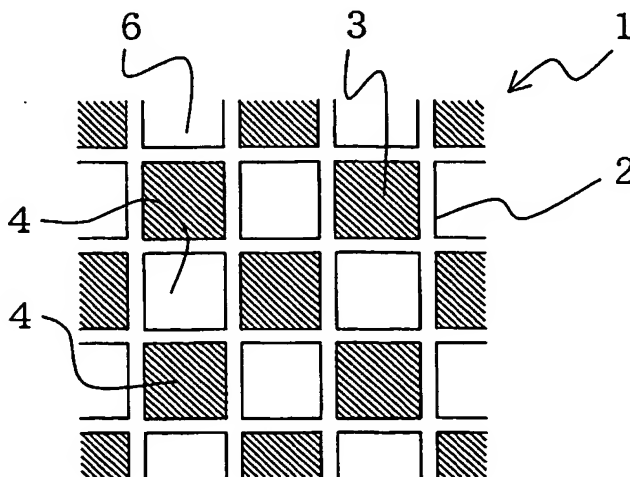
(30) 優先権データ:
特願 2002-323271 2002 年 11 月 7 日 (07.11.2002) JP(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本
碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒
467-8530 愛知県 名古屋 瑞穂区 須田町 2 番 5 6 号
Aichi (JP).(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (BW, GH, GM, KE, LS,
MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特
許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッ
パ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI,
FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK,
TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ,
GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 金田 淳志
(KANEDA, Atsushi) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県 名古屋
市 瑞穂区 須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会
社内 Aichi (JP). 榊川 直 (MASUKAWA, Naoshi) [JP/JP];
〒467-8530 愛知県 名古屋 瑞穂区 須田町 2 番
5 6 号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 市川 周一
(ICHIKAWA, Shuichi) [JP/JP]; 〒467-8530 愛知県 名添付公開書類:
— 国際調査報告書2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HONEYCOMB STRUCTURE

(54) 発明の名称: ハニカム構造体



(57) Abstract: A honeycomb structure (1) making it difficult for cracking to occur at end faces and having an excellent durability, comprising a plurality of cells (4) forming fluid flow passages partitioned by partition walls (2), wherein one end parts of the specified cells (4) are sealed by sealing members and the other end parts of the remaining cells (4) are sealed by sealing members, the Young's modulus of the sealing membranes is lower than that of the partition walls (2), the strength of the sealing parts is lower than that of the partition walls, and the porosity of the sealing parts is 97% or higher than that of the partition walls.

(57) 要約: 隔壁 2 によって区画された流体
の流路となる複数のセル 4 を有し、所定
のセル 4 の一方の端部が目封じ部材により
目封じされ、さらに残余のセル 4 の他

方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体 1 であって、目封じ部材のヤング率が、隔壁 2 のヤング率よりも低い。目封じ部の強度が隔壁の強度より低い。目封じ部の気孔率が隔壁の気孔率の 97% 以上である。端面にクラックが生じ難く、耐久性に優れたハニカム構造体を提供する。

WO 2004/042205 A1

明 細 書

ハニカム構造体

技術分野

本発明は、ハニカム構造体に関する。さらに詳しくは、端面にクラックが生じ難く、耐久性に優れたハニカム構造体に関する。

背景技術

従来から、ディーゼルエンジンより排出される排気ガスのような含塵流体中に含まれる粒子状物質を捕集除去するフィルタ（例えば、ディーゼルパティキュレートフィルタ：DPF）として、所定のセルを目封じ部材で目封じしたハニカム構造体を用いられている（例えば、特開平7-332064号公報参照）。そして、近年、そのハニカム構造体で排気ガス进行处理するときの圧力損失を低減し、より効率的に排気ガス进行处理するために、ハニカム構造体の隔壁の高気孔率化が進んでいる（例えば、特開2002-219319号公報参照）。しかし、ハニカム構造体の隔壁の高気孔率化が進むに従い、図2に示すように、ハニカム構造体1の、端部（端面）の隔壁2にクラック5が入り易くなるという問題が生じるようになってきた。ここで、図2に示すハニカム構造体1は、隔壁2によって区画された流体の流路となる複数のセル4を有し、所定のセル4の一方の端部が目封じ部材により目封じされ（目封じ部3が形成される）、さらに残余のセル4の他方の端部（図示せず）が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体である。

発明の開示

本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、端面にクラックが生じ難く、耐久性に優れたハニカム構造体を提供するものである。

本発明によって以下のハニカム構造体を提供される。

〔1〕 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他

方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、前記目封じ部材のヤング率が、前記隔壁のヤング率よりも低いハニカム構造体（本発明の第一の側面）。

〔2〕 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上である〔1〕に記載のハニカム構造体。

〔3〕 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である〔1〕に記載のハニカム構造体。

〔4〕 前記隔壁の気孔率が46%以上である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔5〕 前記隔壁の厚さが400 μ m以下である〔1〕～〔4〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔6〕 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである〔1〕～〔5〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔7〕 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である〔1〕～〔6〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔8〕 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる〔1〕～〔7〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔9〕 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、前記目封じ部材の強度が、前記隔壁の強度よりも低いハニカム構造体（本発明の第二の側面）。

〔10〕 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上である〔9〕に記載のハニカム構造体。

〔11〕 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である〔9〕に記載のハニカム構造体。

〔12〕 前記隔壁の気孔率が46%以上である〔9〕～〔11〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔13〕 前記隔壁の厚さが $400\mu\text{m}$ 以下である〔9〕～〔12〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔14〕 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである〔9〕～〔13〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔15〕 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である〔9〕～〔14〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔16〕 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる〔9〕～〔15〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔17〕 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上であるハニカム構造体（本発明の第三の側面）。

〔18〕 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である〔17〕に記載のハニカム構造体。

〔19〕 前記隔壁の気孔率が46%以上である〔17〕又は〔18〕に記載のハニカム構造体。

〔20〕 前記隔壁の厚さが $400\mu\text{m}$ 以下である〔17〕～〔19〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔21〕 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである〔17〕～〔20〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔22〕 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である〔17〕～〔21〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

〔23〕 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる〔17〕～〔22〕のいずれかに記載のハニカム構造体。

図 1 は、本発明のハニカム構造体の一の実施の形態における、一の端面の一部を示す平面図である。

図 2 は、従来のハニカム構造体の一例における、一の端面の一部を示す平面図である。

図 3 は、「目封じ部材の気孔率／隔壁の気孔率」と「歩留まり」との関係を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

本発明のハニカム構造体は、目封じ部材のヤング率を隔壁のヤング率より低くしたため、ハニカム構造体の端面に応力が加わったときに、隔壁が歪むのと同様に目封じ部も歪むことにより、隔壁の部分的な応力集中が緩和されるため、隔壁にクラックが入るのを防止することができる（本発明の第一の側面）。また、目封じ部材の強度を隔壁の強度より低くしたため、ハニカム構造体の端面に応力が加わったときに、隔壁の強度が高いため目封じ部材により押し割られることなく、また隔壁にクラックが入る前に目封じ部が歪み、隔壁にクラックが入るのを防止することができる（本発明の第二の側面）。さらに、目封じ部材の気孔率を隔壁の気孔率の 97% 以上としたため、目封じ部材のヤング率が隔壁のヤング率より低くなり、また目封じ部材の強度が隔壁の強度より低くなるため、隔壁にクラックが入るのを防止することができる（本発明の第三の側面）。

以下、本発明（第一の側面、第二の側面及び第三の側面）の実施の形態を図面を参照しながら具体的に説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、適宜設計の変更、改良等が加えられることが理解されるべきである。

図 1 は、本発明の第一の側面のハニカム構造体（以下、単に「第一の側面」ということがある）の一の実施の形態を示し、ハニカム構造体の一方の端面の一部を拡大した平面図である。図 1 に示すように、隔壁 2 によって区画された流体の流路となる複数のセル 4 を有し、所定のセル 4 の一方の端部が目封じ部材により目封じされ（目封じ部 3 が形成される）、さらに残余のセル 4 の他方の端部（図示せず）が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、目封じ

部材のヤング率が、隔壁 2 のヤング率よりも低いハニカム構造体 1 である。また、ハニカム構造体 1 の一方の端面 6 及び他方の端面（図示しない）において市松模様が形成されるように、目封じされたセルと目封じされていないセルとが交互に並んでいる。

このように、目封じ部材のヤング率を隔壁 2 のヤング率より低くしたため、ハニカム構造体 1 の端面に応力が加わったときに、隔壁 2 が歪むのと同様に目封じ部 3 も歪むことにより、隔壁 2 の部分的な応力集中が緩和されるため、隔壁 2 にクラックが入るのを防止することができ、耐久性を向上させることができる。ハニカム構造体 1 の端面に応力が加わる場合としては、例えば、ハニカム構造体を加熱してスート再生する場合に、温度差等による熱応力が端面に加わる場合や、製造工程中の焼成工程において、焼成炉内の温度分布や造孔材等の燃焼による発熱の影響で熱応力が端面に発生した場合等が挙げられる。また、ハニカム構造体の長軸方向を水平方向にして横置きにした状態で焼成した場合にも、目封じ部の荷重がハニカム構造体の隔壁にかかり、端面に応力が加わることがある。

本発明の第一の側面のハニカム構造体は、隔壁の気孔率が 46 % 以上の場合に好適に使用される。すなわち、第一の側面のハニカム構造体は、近年、ハニカム構造体の隔壁の気孔率が高くなったために隔壁にクラックが発生し易くなった、という問題を、解決するためになされた発明であり、気孔率が 46 % 以上という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすものである。また、第一の側面のハニカム構造体は、隔壁の厚さが 400 μm 以下の場合に好適に使用される。隔壁の厚さが薄くなると隔壁にクラックが発生し易くなるため、隔壁の厚さが 400 μm 以下という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすものである。

隔壁 2 の材質は、DPF 等のフィルタとして使用するため、多孔質セラミックであることが好ましい。多孔質セラミックとしては、コーゼライト、ムライト、アルミナ、スピネル、炭化珪素、窒化珪素、リチウムアルミニウムシリケート及びチタン酸アルミニウムからなる群から選ばれる少なくとも 1 種のセラミック等を使用することができる。熱伝導率が高く放熱し易いという点で炭化珪素が好ましい。

ハニカム構造体の形状は、特に限定されるものではなく、例えば、図1に示す端面を底面とする柱状構造であり、ハニカム構造体の柱状構造の中心軸に垂直な断面形状（底面の形状）としては、四角形等の多角形、円形、楕円形、長円形、異形等である。また、セルの断面形状も特に限定されるものではなく、三角形、四角形、六角形、円形等である。

また、隔壁により形成されるセルのセル密度は、特に限定されるものではないが、セル密度が小さすぎると、フィルタとしての強度及び有効GSA（幾何学的表面積）が不足し、セル密度が大きすぎると、被処理流体が流れる場合の圧力損失が大きくなる。セル密度は、好ましくは、6～2000セル／平方インチ（0.9～311セル／cm²）、さらに好ましくは50～1000セル／平方インチ（7.8～155セル／cm²）、最も好ましくは100～400セル／平方インチ（15.5～62.0セル／cm²）の範囲である。

目封じ部材の気孔率は隔壁2の気孔率の97%以上であることが好ましい。97%より低いと、目封じ部材のヤング率が隔壁2のヤング率より高くなることがある。また本発明をより効果的にするためには、目封じ部材の気孔率が隔壁2の気孔率の105%以上であることがさらに好ましい。

目封じ部材の材質は隔壁2の材質と同じものを使用することができる。また、目封じ部材の材質を炭化珪素質とした場合、炭化珪素質そのもののヤング率の高さより、ハニカム構造体の端面にクラックが発生することがあった。しかし、気孔率を高くする等によりヤング率を低下させて使用することにより、ハニカム構造体の端面にクラックが発生しないようにすることができる。

目封じ部3の、ハニカム構造体の長軸方向の長さ（深さ）は、1～20mmが好ましい。1mmより短いと目封じ部材の強度が著しく低下し、20mmより長いとフィルタとしての圧力損失が上昇してしまう。

本発明の第一の側面のハニカム構造体の製造方法を以下に示す。

セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合し、その後真空土練機等を使用して混練し、可塑性の坏土を作製する。そして、この坏土を押出成形し、複数のセル構造（ハニカム構造）を有する成形体を作製した後、この成形体を乾燥してハニカム構造のセラミック成形体を作製する。

セラミック原料の種類は、所望の（ハニカム構造体を形成する）セラミックの原料を使用し、例えば、炭化珪素のハニカム構造体を作製する場合はSiC粉及び金属Si粉の混合物を使用することができる。

造孔材の種類は、特に限定されるものではないが、グラファイト、小麦粉、澱粉、フェノール樹脂、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート、発泡樹脂、シラスバルーン、フライアッシュバルーン等が挙げられる。このような造孔材の種類や添加量を変化させることによりセラミック成形体の隔壁（ハニカム構造体の隔壁）の気孔率、ヤング率を制御することができる。また、造孔材の添加量は、セラミック原料100質量部に対して、0.5～30質量部が好ましい。

界面活性剤の種類は、特に限定されるものではないが、エチレングリコール、デキストリン、脂肪酸石鹸、ポリアルコール等が挙げられる。また、界面活性剤の添加量は、セラミック原料100質量部に対して、0.1～5質量部が好ましい。

水の添加量は、通常、セラミック原料100質量部に対して、25～45質量部程度である。

セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外には、メチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、ポリエチレンオキサイド、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシルメチルセルロース、ポリビニルアルコール等を添加することができる。

押出成形は、例えば、ラム式押出し成形機、2軸スクリー式連続押出成形装置等を用いて行うことができる。押出成形するときには、所望のセル形状、隔壁厚さ、セル密度を有する口金を使用して、所望のハニカム構造を有する成形体を作製することができる。

押出成形後の成形体の乾燥方法は、特に限定されるものではないが、例えば、熱風乾燥、マイクロ波乾燥、誘電乾燥、減圧乾燥、真空乾燥、凍結乾燥等を挙げることができる。中でも、誘電乾燥、マイクロ波又は熱風乾燥を単独で又は組合せて行うことが好ましい。また、乾燥条件としては、80～150℃で10分～1時間乾燥するのが好ましい。

目封じ部材の原料は、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合してスラリー状にし、その後ミキサー等を使用して混練することにより得ることができる。

目封じ部材の原料に使用する、セラミック原料の種類は、所望の目封じ部材の材質になるものを使用する。例えば、炭化珪素の場合はS i C粉及び金属S i粉の混合物を使用することができる。好ましくは、上記ハニカム構造のセラミック成形体を作製するときに使用されるセラミック原料と同じものである。また、目封じ部材の原料に使用するものとしては、炭化珪素質を使用することもできる。

目封じ部材の原料に使用する、造孔材の種類は、特に限定されるものではないが、グラファイト、小麦粉、澱粉、フェノール樹脂、ポリメタクリル酸メチル、ポリエチレン、ポリエチレンテレフタレート、発泡樹脂、シラスバルーン、フライアッシュバルーン等が挙げられる。好ましくは、脱脂時に発熱量の少ない、発泡樹脂、フライアッシュバルーンである。このような造孔材の種類や添加量を変化させることにより目封じ部材の気孔率、ヤング率を制御することができる。造孔材の添加量は、目封じ部材の原料に使用するセラミック原料100質量部に対して、0.1～20質量部が好ましい。

目封じ部材の原料に使用する、界面活性剤の種類は、特に限定されるものではないが、エチレングリコール、デキストリン、脂肪酸石鹼、ポリアルコール等が挙げられる。

目封じ部材の原料としては、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外には、メチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、ポリエチレンオキサイド、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシルメチルセルロース、ポリビニルアルコール等を使用することができる。

次に、得られたハニカム構造のセラミック成形体の一方の端面（ハニカム構造の一方の端面）において、一部のセルにマスクをし、その端面を、上記目封じ部材が貯留された貯留容器中に浸漬して、マスクをしていないセルに目封じ部材を挿入し、目封じ部を形成する。そして、ハニカム構造の他方の端面において、上記一方の端面においてマスクをしなかったセル（残余のセル）にマスクをし、そ

の端面を、上記目封じ部材が貯留された貯留容器中に浸漬して、マスクをしていないセルに目封じ部材を挿入し、目封じ部を形成する。このとき、目封じ部を形成したセルと目封じ部を形成しないセルとが交互に並び、両端面において、市松模様を形成するようにしている。両端面は、市松模様を形成することが好ましいが、市松模様を形成しない場合でも、本発明のハニカム構造体の効果は発揮される。

また、マスクの方法は特に限定されないが、例えば、ハニカム構造体の端面全体に粘着性フィルムを貼着し、その粘着性フィルムを部分的に孔開けする方法等が挙げられる。より具体的には、ハニカム構造体の端面全体に粘着性フィルムを貼着した後に、目封じ部を形成したいセルに相当する部分のみをレーザにより孔を開ける方法等を好適に用いることができる。粘着性フィルムとしては、ポリエステル、ポリエチレン、熱硬化性樹脂等の樹脂からなるフィルムの一方の表面に粘着剤が塗布されたもの等を好適に用いることができる。

上記両端面が市松模様状に目封じされたハニカム構造のセラミック成形体を、80～150℃で、5分～2時間かけて乾燥させる。乾燥させた後、大気雰囲気中200～1000℃で、1～10時間かけて脱脂する。その後、アルゴン不活性雰囲気中で1300～2300℃で、1～5時間かけて焼成して、目封じ部材で目封じされた本実施の形態のハニカム構造体を作製する。

上記焼成時に、ハニカム構造体の目封じ部材のヤング率が隔壁のヤング率より高いと、焼成時の温度差等による熱応力がハニカム構造体の端面に発生した場合に、隔壁の歪みを緩和することなく、隔壁に部分的な応力集中が生じるため、隔壁にクラックが入ることがある。そのため、目封じ部材のヤング率は隔壁のヤング率より低くする必要がある。

また、焼成時における、目封じ部材の割掛けが隔壁の割掛けより小さい場合にも、割掛けの差による応力がハニカム構造体の端面に発生し、隔壁に部分的な集中応力が生じるため、隔壁にクラックが入ることがある。そのため、目封じ部材のヤング率は隔壁のヤング率より低くする必要がある。ここで、割掛けとは、焼成前後での膨張、収縮を表現する値であり、 $(\text{焼成前の長さ}) / (\text{焼成後の長さ})$ より求めることができる。

本実施の形態のハニカム構造体の製造において、その製造時の歩留まりに関しては、目封じ部材の気孔率は、隔壁の気孔率の97%以上が好ましく、さらに好ましくは105%以上である。97%より低いとハニカム構造体の製造時における歩留まりが低くなることがある。

次に本発明の第二の側面のハニカム構造体（以下、単に「第二の側面」ということがある）について説明する。本発明の第二の側面の一の実施の形態は、第一の側面と同様に、図1で示すことができる。第二の側面は、図1に示すように、隔壁2によって区画された流体の流路となる複数のセル4を有し、所定のセル4の一方の端部が目封じ部材により目封じされ（目封じ部3が形成される）、さらに残余のセル4の他方の端部（図示せず）が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、目封じ部材の強度が、隔壁2の強度よりも低いハニカム構造体1である。また、ハニカム構造体1の一方の端面6及び他方の端面（図示しない）において市松模様が形成されるように、目封じされたセルと目封じされていないセルとが交互に並んでいる。

このように、目封じ部材の強度を隔壁2の強度より低くしたため、ハニカム構造体1の端面に応力が加わったときに、隔壁の強度が高いため目封じ部材により押し割られることなく、また隔壁にクラックが入る前に目封じ部が歪み、隔壁にクラックが入るのを防止することができ、耐久性を向上させることができる。ハニカム構造体1の端面に応力が加わる場合としては、例えば、ハニカム構造体を加熱してスート再生する場合に、温度差等による熱応力が端面に加わる場合や、製造工程中の焼成工程において、焼成炉内の温度分布や造孔材等の燃焼による発熱の影響で熱応力が端面に発生した場合等が挙げられる。また、ハニカム構造体の長軸方向を水平方向にして横置きにした状態で焼成した場合にも、目封じ部の荷重がハニカム構造体の隔壁にかかり、端面に応力が加わることもある。

第二の側面のハニカム構造体は、隔壁の気孔率が46%以上の場合に好適に使用される。すなわち、第二の側面のハニカム構造体は、近年、ハニカム構造体の隔壁の気孔率が高くなったために隔壁にクラックが発生し易くなった、という問題を、解決するためになされた発明であり、気孔率が46%以上という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすもので

ある。また、第二の側面のハニカム構造体は、隔壁の厚さが $400\mu\text{m}$ 以下の場合に好適に使用される。隔壁の厚さが薄くなると隔壁にクラックが発生し易くなるため、隔壁の厚さが $400\mu\text{m}$ 以下という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすものである。

隔壁2の材質は、本発明の第一の側面の場合と同じものを使用することができる。

ハニカム構造体の形状は、特に限定されるものではなく、第一の側面の場合と同じ形状とすることができる。

また、隔壁により形成されるセルのセル密度は、第一の側面の場合と同じセル密度とすることができる。

目封じ部材の気孔率は隔壁2の気孔率の97%以上であることが好ましい。97%より低いと、目封じ部材の強度が隔壁2の強度より高くなることがある。また本発明をより効果的にするためには、目封じ部材の気孔率が隔壁2の気孔率の105%以上であることがさらに好ましい。

目封じ部材の材質は隔壁2の材質と同じものを使用することができる。また、目封じ部材の材質を炭化珪素質とした場合、炭化珪素質そのものの強度の高さより、ハニカム構造体の端面にクラックが発生することがあった。しかし、気孔率を高くする等により強度を低下させて使用することにより、ハニカム構造体の端面にクラックが発生しないようにすることができる。

目封じ部3の、ハニカム構造体の長軸方向の長さ（深さ）は、第一の側面の場合と同じ長さにすることができる。

本発明の第二の側面のハニカム構造体の製造方法を以下に示す。

本発明の第一の側面の場合と同様に、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合し、その後真空土練機等を使用して混練し、可塑性の坏土を作製する。そして、この坏土を押出成形し、複数のセル構造（ハニカム構造）を有する成形体を作製した後、この成形体を乾燥してハニカム構造のセラミック成形体を作製する。

セラミック原料の種類は、所望の（ハニカム構造体を形成する）セラミックの原料を使用し、例えば、炭化珪素のハニカム構造体を作製する場合はSiC粉及

び金属Si粉の混合物を使用することができる。

造孔材の種類、添加量は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じ種類、添加量とすることができる。このような造孔材の種類や添加量を変化させることによりセラミック成形体の隔壁（ハニカム構造体の隔壁）の気孔率、強度を制御することができる。

界面活性剤の種類、添加量は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じ種類、添加量とすることができる。

水の添加量は、本発明の第一の側面の場合と同じ添加量にすることができる。

セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外の添加物は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

押出成形は、本発明の第一の側面の場合と同様に、例えば、ラム式押出し成形機、2軸スクリー式連続押出成形装置等を用いて行うことができる。押出成形するときには、所望のセル形状、隔壁厚さ、セル密度を有する口金を使用して、所望のハニカム構造を有する成形体を作製することができる。

押出成形後の成形体の乾燥方法は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

目封じ部材の原料は、本発明の第一の側面の場合と同様に、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合してスラリー状にし、その後ミキサー等を使用して混練することにより得ることができる。

目封じ部材の原料に使用する、セラミック原料の種類は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。また、目封じ部材の原料に使用するものとしては、炭化珪素質を使用することもできる。

目封じ部材の原料に使用する、造孔材の種類は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。このような造孔材の種類や添加量を変化させることにより目封じ部材の気孔率、強度を制御することができる。造孔材の添加量は、目封じ部材の原料に使用するセラミック原料100質量部に対して、0.1～20質量部が好ましい。

目封じ部材の原料に使用する、界面活性剤の種類は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

目封じ部材の原料としては、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外には、本発明の第一の側面の場合と同じものを使用することができる。

次に、本発明の第一の側面の場合と同様の方法で、ハニカム構造体の両端面に市松模様が形成されるように、目封じ部を形成する。両端面は、市松模様が形成することが好ましいが、市松模様が形成しない場合でも、本発明のハニカム構造体の効果は発揮される。

また、マスクの方法は特に限定されないが、本発明の第一の側面の場合と同様の方法で、マスクすることができる。粘着性フィルムは、本発明の第一の側面の場合と同じものを好適に用いることができる。

上記両端面が市松模様状に目封じされたハニカム構造のセラミック成形体を、本発明の第一の側面の場合と同様の条件で、乾燥、脱脂、焼成して、目封じ部材で目封じされた本実施の形態のハニカム構造体を作製する。

上記焼成時に、ハニカム構造体の目封じ部材の強度が隔壁の強度より高いと、焼成時の温度差等による熱応力がハニカム構造体の端面に発生した場合に、隔壁の強度が低いため、熱応力により隔壁にクラックが入ることがある。そのため、目封じ部材の強度は隔壁の強度より低くする必要がある。

また、焼成時における、目封じ部材の割掛けが隔壁の割掛けより小さい場合にも、割掛けの差による応力がハニカム構造体の端面に発生し、隔壁に部分的な集中応力が生じるため、隔壁にクラックが入ることがある。そのため、目封じ部材の強度は隔壁の強度より低くする必要がある。

本実施の形態のハニカム構造体の製造において、その製造時の歩留まりに関しては、目封じ部材の気孔率は、隔壁の気孔率の97%以上が好ましく、さらに好ましくは105%以上である。97%より低いとハニカム構造体の製造時における歩留まりが低くなることがある。

次に本発明の第三の側面のハニカム構造体（以下、単に「第三の側面」ということがある）について説明する。本発明の第三の側面の一の実施の形態は、本発明の第一の側面と同様に、図1で示すことができる。第三の側面は、図1に示すように、隔壁2によって区画された流体の流路となる複数のセル4を有し、所定のセル4の一方の端部が目封じ部材により目封じされ（目封じ部3が形成される

）、さらに残余のセル4の他方の端部（図示せず）が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、目封じ部材の気孔率が、隔壁2の気孔率の97%以上であるハニカム構造体1である。また、ハニカム構造体1の一方の端面6及び他方の端面（図示しない）において市松模様が形成されるように、目封じされたセルと目封じされていないセルとが交互に並んでいる。

このように、目封じ部材の気孔率を隔壁2の気孔率の97%以上としたため、目封じ部材のヤング率を隔壁2のヤング率より低くすることができ、さらに、目封じ部材の強度を隔壁2の強度より低くすることができる。これにより、ハニカム構造体1の端面に応力が加わったときに、第一の側面及び第二の側面と同様に、隔壁にクラックが入るのを防止することができ、耐久性を向上させることができる。また本発明をより効果的にするためには、目封じ部材の気孔率が隔壁2の気孔率の105%以上であることが好ましい。ハニカム構造体1の端面に応力が加わる場合としては、例えば、ハニカム構造体を加熱してスート再生する場合に、温度差等による熱応力が端面に加わる場合や、製造工程中の焼成工程において、焼成炉内の温度分布や造孔材等の燃焼による発熱の影響で熱応力が端面に発生した場合等が挙げられる。また、ハニカム構造体の長軸方向を水平方向にして横置きにした状態で焼成した場合にも、目封じ部の荷重がハニカム構造体の隔壁にかかり、端面に応力が加わることがある。

第三の側面のハニカム構造体は、隔壁の気孔率が46%以上の場合に好適に使用される。すなわち、第三の側面のハニカム構造体は、近年、ハニカム構造体の隔壁の気孔率が高くなったために隔壁にクラックが発生し易くなった、という問題を、解決するためになされた発明であり、気孔率が46%以上という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすものである。また、第三の側面のハニカム構造体は、隔壁の厚さが400 μ m以下の場合に好適に使用される。隔壁の厚さが薄くなると隔壁にクラックが発生し易くなるため、隔壁の厚さが400 μ m以下という、よりクラックが発生し易いハニカム構造体において、より大きな効果をもたらすものである。

隔壁2の材質は、本発明の第一の側面の場合と同じものを使用することができる。

ハニカム構造体の形状は、特に限定されるものではなく、本発明の第一の側面の場合と同じ形状とすることができる。

また、隔壁により形成されるセルのセル密度は、本発明の第一の側面の場合と同じセル密度とすることができる。

目封じ部材の材質は隔壁 2 の材質と同じものを使用することができる。また、目封じ部材の材質を炭化珪素質とした場合、気孔率の低い炭化珪素質を使用すると、ハニカム構造体の端面にクラックが発生することがあった。しかし、気孔率を高くして使用することにより、ハニカム構造体の端面にクラックが発生しないようにすることができる。

目封じ部 3 の、ハニカム構造体の長軸方向の長さ（深さ）は、本発明の第一の側面の場合と同じ長さにすることができる。

本発明の第三の側面のハニカム構造体の製造方法を以下に示す。

本発明の第一の側面の場合と同様に、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合し、その後真空土練機等を使用して混練し、可塑性の坏土を作製する。そして、この坏土を押出成形し、複数のセル構造（ハニカム構造）を有する成形体を作製した後、この成形体を乾燥してハニカム構造のセラミック成形体を作製する。

セラミック原料の種類は、所望の（ハニカム構造体を形成する）セラミックの原料を使用し、例えば、炭化珪素のハニカム構造体を作製する場合は SiC 粉及び金属 Si 粉の混合物を使用することができる。

造孔材の種類、添加量は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じ種類、添加量とすることができる。このような造孔材の種類や添加量を変化させることによりセラミック成形体の隔壁（ハニカム構造体の隔壁）の気孔率を制御することができる。

界面活性剤の種類、添加量は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じ種類、添加量とすることができる。

水の添加量は、本発明の第一の側面の場合と同じ添加量にすることができる。

セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外の添加物は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

押出成形は、本発明の第一の側面の場合の場合と同様に、例えば、ラム式押出し成形機、2軸スクリー式連続押出成形装置等を用いて行うことができる。押出成形するときには、所望のセル形状、隔壁厚さ、セル密度を有する口金を使用して、所望のハニカム構造を有する成形体を作製することができる。

押出成形後の成形体の乾燥方法は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

目封じ部材の原料は、本発明の第一の側面の場合と同様に、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水等を混合してスラリー状にし、その後ミキサー等を使用して混練することにより得ることができる。

目封じ部材の原料に使用する、セラミック原料の種類は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。また、目封じ部材の原料に使用するものとしては、炭化珪素質を使用することもできる。

目封じ部材の原料に使用する、造孔材の種類は、特に限定されるものではないが、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。このような造孔材の種類や添加量を変化させることにより目封じ部材の気孔率を制御することができる。造孔材の添加量は、目封じ部材の原料に使用するセラミック原料100質量部に対して、0.1～20質量部が好ましい。

目封じ部材の原料に使用する、界面活性剤の種類は、本発明の第一の側面の場合と同じにすることができる。

目封じ部材の原料としては、セラミック原料、造孔材、界面活性剤及び水以外には、本発明の第一の側面の場合と同じものを使用することができる。

次に、本発明の第一の側面の場合と同様の方法で、ハニカム構造体の両端面に市松模様が形成されるように、目封じ部を形成する。両端面は、市松模様が形成することが好ましいが、市松模様が形成しない場合でも、本発明のハニカム構造体の効果は発揮される。

また、マスクの方法は特に限定されないが、本発明の第一の側面の場合と同様の方法で、マスクすることができる。粘着性フィルムは、本発明の第一の側面の場合と同じものを好適に用いることができる。

上記両端面が市松模様状に目封じされたハニカム構造のセラミック成形体を、

本発明の第一の側面の場合と同様の条件で、乾燥、脱脂、焼成して、目封じ部材で目封じされた本実施の形態のハニカム構造体を作製する。

上記焼成時に、ハニカム構造体の目封じ部材の気孔率が隔壁の気孔率の 97% より低いと、焼成時の温度差等による熱応力がハニカム構造体の端面に発生した場合に、隔壁のヤング率及び強度が目封じ部材のヤング率及び強度より低くなるため、熱応力により隔壁にクラックが入ることがある。そのため、目封じ部材の気孔率は隔壁の気孔率の 97% 以上にする必要がある。

また、焼成時における、目封じ部材の割掛けが隔壁の割掛けより小さい場合にも、割掛けの差による応力がハニカム構造体の端面に発生し、隔壁に部分的な集中応力が生じるため、隔壁にクラックが入り易くなる。そのような隔壁のクラックの発生を防止するためにも、目封じ部材の気孔率を隔壁の気孔率の 97% 以上とする必要がある。

本発明の第三の側面の実施の形態のハニカム構造体の製造において、その製造時の歩留まりを向上させるためにも、目封じ部材の気孔率は、隔壁の気孔率の 97% 以上であり、好ましくは 105% 以上である。97% より低いとハニカム構造体の製造時における歩留まりが低くなる。

(実施例)

以下、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

セラミック原料として、SiC 粉末及び金属 Si 粉末を混合し、それに造孔材として澱粉及び発泡樹脂を添加し、さらにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロースと、界面活性剤及び水とをそれぞれ添加して表 1 に示す組成の混合物を作製し、これらの混合物を真空土練機により混練し、可塑性の坏土を作製した。この坏土を押出成形機にて押出成形し、得られた成形体をマイクロ波及び熱風で乾燥することにより、ハニカム構造を有する成形体（成形体 No. 1～3）を得た。得られたハニカム構造を有する成形体は、隔壁の厚さが $310\text{ }\mu\text{m}$ 、セル密度が $46.5\text{ セル}/\text{cm}^2$ （ $300\text{ セル}/\text{平方インチ}$ ）、断面の一辺が 35 mm の正方形、長さが 152 mm であった。

(表 1)

| 成形体 No. | SiC粉末平均粒径 (μm) | SiC粉末配合量 (質量部) | 金属Si粉末配合量 (質量部) | 造孔材配合量 (質量部) | ヤング率 (GPa) | 強度 (MPa) | 気孔率 (%) |
|------------|--------------------------------|-------------------|--------------------|-----------------|---------------|-------------|------------|
| 1 | 33 | 80 | 20 | - | 20 | 26 | 46 |
| 2 | 33 | 80 | 20 | 10 | 15 | 20 | 50 |
| 3 | 33 | 80 | 20 | 15 | 7 | 10 | 60 |

セラミック原料として、SiC粉末及び金属Si粉末を混合し、それに造孔材として発泡樹脂を添加し、さらにメチルセルロース及びポリエチレンオキサイドと、界面活性剤及び水とをそれぞれ添加して表2に示す組成の混合物を作製し、これらの混合物をミキサーを用いて30分間混練し、目封じ部材No. A～Dを得た。

(表 2)

| 目封じ部材 No. | SiC粉末平均粒径 (μm) | SiC粉末配合量 (質量部) | 金属Si粉末配合量 (質量部) | 造孔材配合量 (質量部) | ヤング率 (GPa) | 強度 (MPa) | 気孔率 (%) |
|--------------|--------------------------------|-------------------|--------------------|-----------------|---------------|-------------|------------|
| A | 10 | 80 | 20 | - | 16 | 14 | 46 |
| B | 12 | 80 | 20 | - | 5 | 7 | 58 |
| C | 12 | 80 | 20 | 3 | 1.5 | 1.5 | 63 |
| D | 12 | 80 | 20 | 5 | 1.1 | 1.1 | 70 |

成形体No. 1～3のそれぞれにおいて、一方の端部が目封じされたセルと、他方の端部が目封じされたセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされるように、目封じ部材A～Dで所定のセルを目封じする（「成形体No. 1～3」と「目封じ部材A～D」の組み合わせは、表3に示す）。その後、マイクロ波及び熱風で乾燥した後、大気雰囲気中約400℃で脱脂し、その後Ar不活性雰囲気中で約1450℃で焼成して、Si結合SiCのハニカム構造体を得た（実施例1～10、比較例1, 2）。

ハニカム構造体の隔壁の気孔率は水銀圧入法にて測定し、目封じ部材の気孔率はアルキメデス法にて測定した。

得られたハニカム構造体の端面を、光学顕微鏡で観察し、クラックの有無を調査した。結果を表3に示した。ここで、隔壁とはハニカム構造体の隔壁をいう。

「目封じ部材 低」とは、例えばヤング率の場合、隔壁のヤング率の値より目封じ部材のヤング率の値のほうが低いことを示し、「目封じ部材 高」とは、例えばヤング率の場合、隔壁のヤング率の値より目封じ部材のヤング率の値のほうが高いことを示す。「隔壁に対する目封じ部材の気孔率割合(%)」とは、目封じ部材の気孔率を隔壁の気孔率で除した値を100倍した値である。また、図1のような状態が確認された場合には端面にクラックは発生しておらず、図2のような状態が確認された場合には端面にクラックが発生していることとした。そして、「端面におけるクラック発生頻度(n=100)」とは、実施例1～10、比較例1, 2のハニカム構造体をそれぞれ100個ずつ作製したときの、端面においてクラックが発生したハニカム構造体の個数を示したものをいう。また、100個ずつ作製したときに、クラックが発生しなかったハニカム構造体の個数を歩留まり（クラックが発生しなかったハニカム構造体の個数を、作製したハニカム構造体の総数100で除して100倍した値(%)）として図3に示した。尚、図3には、実施例6, 8～10及び比較例1, 2についてのデータを示した。図3において、「目封じ部材の気孔率/隔壁の気孔率(%)」とは、目封じ部材の気孔率を隔壁の気孔率で除して100倍した値である。

(表 3)

| | 成形体No. | 目封じ部材No. | 隔壁と目封じ部材 のヤング率比較 | 隔壁と目封じ部材 の強度比較 | 隔壁に対する目封じ部材 の気孔率割合 (%) | 端面における クラック発生頻度 (n=100) |
|--------|--------|----------|---------------------|-------------------|---------------------------|-------------------------------|
| 実施例 1 | 1 | D | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 152 | 0 |
| 実施例 2 | 2 | D | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 140 | 0 |
| 実施例 3 | 3 | D | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 117 | 0 |
| 実施例 4 | 1 | C | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 137 | 0 |
| 実施例 5 | 2 | C | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 126 | 0 |
| 実施例 6 | 3 | C | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 105 | 0 |
| 実施例 7 | 1 | B | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 126 | 0 |
| 実施例 8 | 2 | B | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 116 | 0 |
| 実施例 9 | 3 | B | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 97 | 9 |
| 実施例 10 | 1 | A | 目封じ部材 低 | 目封じ部材 低 | 100 | 6 |
| 比較例 1 | 2 | A | 目封じ部材 高 | 目封じ部材 高 | 92 | 95 |
| 比較例 2 | 3 | A | 目封じ部材 高 | 目封じ部材 高 | 77 | 100 |

表 3 より、ハニカム構造体の隔壁のヤング率より目封じ部材のヤング率のほう
が低く、ハニカム構造体の隔壁の強度より目封じ部材の強度のほうが低く、ハニ
カム構造体の目封じ部材の気孔率が隔壁の気孔率の 97 % 以上であるときに、ハ
ニカム構造体の端面におけるクラック発生頻度 ($n = 100$) が低くなることが
わかる。上述の実施例では、ハニカム構造体の隔壁のヤング率より目封じ部材の
ヤング率のほうが低いこと、ハニカム構造体の隔壁の強度より目封じ部材の強度
のほうが低いこと、及びハニカム構造体の目封じ部材の気孔率が隔壁の気孔率の
97 % 以上であることの、3つの条件を同時に満たしているが、これらの3つの
条件は少なくとも1つ満たしていれば、ハニカム構造体の端面におけるクラック
発生頻度を低くすることができる。

図 3 より、「目封じ部材の気孔率／隔壁の気孔率 (%)」が 97 % より低い場
合 (比較例 1, 2) には、歩留まりが非常に低いが、97 % 以上である実施例 9
, 10 では歩留まりが飛躍的に向上し、105 % 以上である実施例 6, 8 ではさ
らに歩留まりが向上して 100 % であった。尚、実施例 1 ~ 5, 7 においても、
実施例 6, 8 と同様に歩留まりは 100 % であった (図示せず)。

産業上の利用可能性

上述したように、本発明のハニカム構造体 (第一、第二及び第三の側面) によ
れば、スート再生時や焼成時に端面にクラックが生じ難く、耐久性に優れたもの
となる。

請 求 の 範 囲

1. 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、

前記目封じ部材のヤング率が、前記隔壁のヤング率よりも低いハニカム構造体

。

2. 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上である請求項1に記載のハニカム構造体。

3. 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である請求項1に記載のハニカム構造体。

4. 前記隔壁の気孔率が46%以上である請求項1～3のいずれかに記載のハニカム構造体。

5. 前記隔壁の厚さが400 μ m以下である請求項1～4のいずれかに記載のハニカム構造体。

6. 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである請求項1～5のいずれかに記載のハニカム構造体。

7. 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である請求項1～6のいずれかに記載のハニカム構造体。

8. 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる請求項1～7のいずれかに記載のハニカム構造体。

9. 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、

前記目封じ部材の強度が、前記隔壁の強度よりも低いハニカム構造体。

10. 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上である請求項9に記載のハニカム構造体。

11. 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である請求項9に記載のハニカム構造体。

12. 前記隔壁の気孔率が46%以上である請求項9～11のいずれかに記載のハニカム構造体。

13. 前記隔壁の厚さが400 μ m以下である請求項9～12のいずれかに記載のハニカム構造体。

14. 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである請求項9～13のいずれかに記載のハニカム構造体。

15. 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である請求項9～14のいずれかに記載のハニカム構造体。

16. 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる請求項9～15のいずれかに記載のハニカム構造体。

17. 隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体であって、

前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上であるハニカム構造体。

18. 前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の105%以上である請求項17に記載のハニカム構造体。

19. 前記隔壁の気孔率が46%以上である請求項17又は18に記載のハニカム構造体。

20. 前記隔壁の厚さが400 μ m以下である請求項17～19のいずれかに記載のハニカム構造体。

21. 前記隔壁の材質が多孔質セラミックである請求項17～20のいずれかに記載のハニカム構造体。

22. 前記目封じ部材の材質が炭化珪素質である請求項17～21のいずれかに記載のハニカム構造体。

23. 一方の端部が目封じされた前記所定のセルと、他方の端部が目封じされた前記残余のセルとが交互に配設され、両端部がそれぞれ市松模様状に目封じされてなる請求項17～22のいずれかに記載のハニカム構造体。

1 / 2

図 1

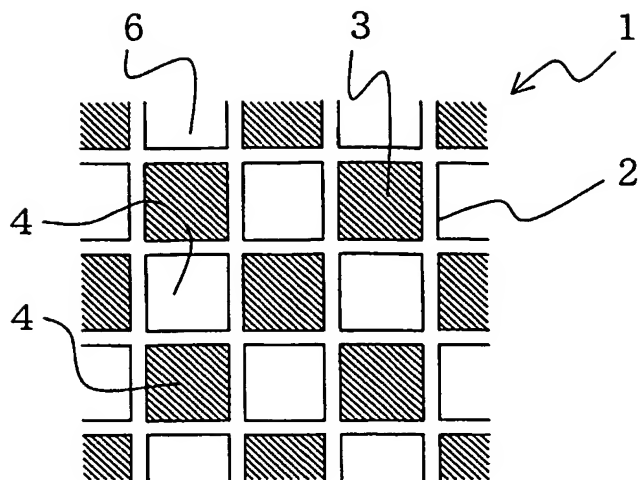
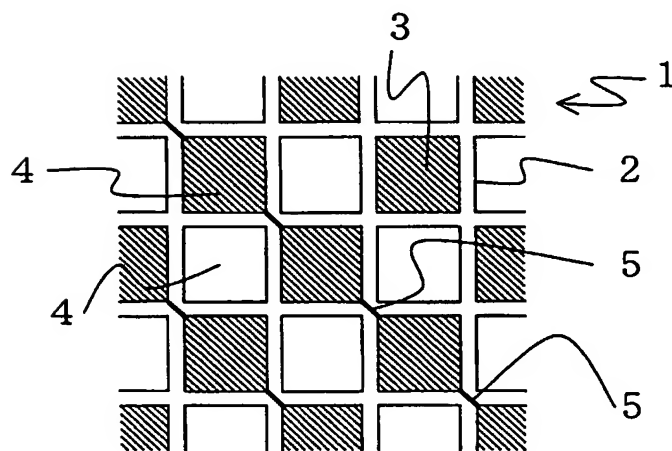
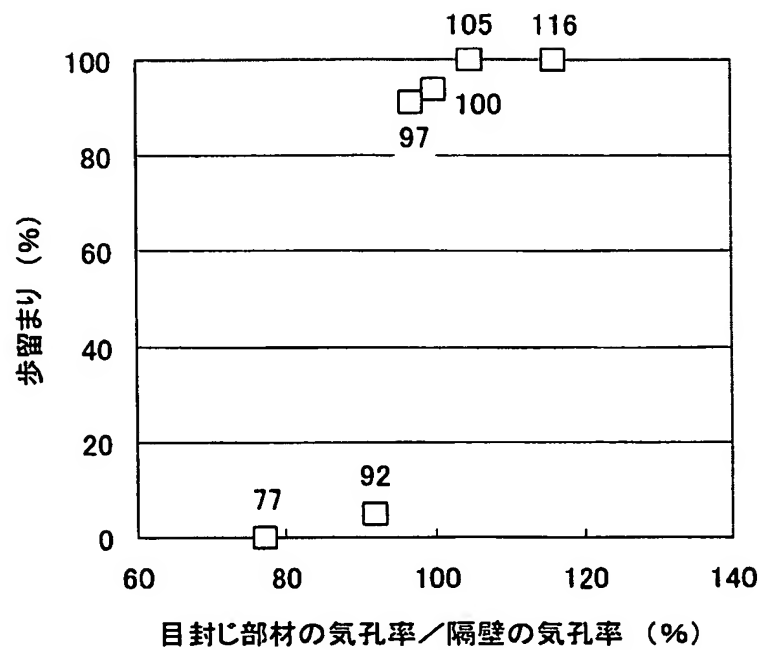


図 2



2 / 2

図 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/14185

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ F01N3/022, B32B3/12, C04B38/00, B01D39/20//B01D46/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ F01N3/022, B32B3/12, C04B38/00, B01D39/20, B01D46/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1926-1996 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2003 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2003 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2003 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---|---|
| X Y | US 5595581 A (NGK INSULATORS LTD.), 21 January, 1997 (21.01.97), Claims; examples; tables 1, 2 & JP 7-332064 A | 1-3, 6, 8-11, 14, 16-18, 21, 23 4, 5, 7, 12, 13, 15, 19, 20, 22 |
| X Y | EP 1184066 A1 (NGK INSULATORS LTD.), 06 March, 2002 (06.03.02), Claims; page 3, lines 28 to 31 & WO 01/70373 A1 & CA 2374428 A & JP 2001-269585 A & AU 4111501 A & BR 1184066 A & CN 1365298 T | 17, 19-23 4, 5, 7, 12, 13, 15, 19, 20, 22 |
| X Y | EP 1251247 A1 (DENSO CORP.), 23 October, 2002 (23.10.02), Claims; examples; tables 1, 2 & JP 2003-3823 A1 & US 2002/189217 A1 | 1-6, 8-14, 16-21, 23 7, 15, 22 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

| | |
|---|--|
| * Special categories of cited documents: | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means | |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | |

Date of the actual completion of the international search
06 January, 2004 (06.01.04)

Date of mailing of the international search report
20 January, 2004 (20.01.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/14185

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-------------------------|
| P, X | US 2003/165662 A1 (HITACHI METALS LTD.), 04 September, 2003 (04.09.03), Claims; examples; table 1 & EP 1316686 A2 & JP 2003-236322 A & JP 2003-251198 A & JP 2003-269131 A & CA 1424493 A | 1-6, 8-14, 16-21, 23 |
| A | JP 2002-239322 A (HITACHI METALS LTD.), 27 August, 2002 (27.08.02), Full text (Family: none) | 1-23 |
| A | JP 1-145378 A (Ibiden Co., Ltd.), 07 June, 1989 (07.06.89), Full text (Family: none) | 1-23 |
| A | Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 146426/1984 (Laid-open No. 62217/1986) (Toyota Motor Corp.), 26 April, 1986 (26.04.86), Claims; examples; Figs. 1, 2 (Family: none) | 1-23 |
| P, A | EP 1293241 A2 (HINO MOTORS LTD., HITACHI METALS LTD.), 19 March, 2003 (19.03.03), Full text & CN 1417455 A & JP 2003-126629 A & JP 2003-176709 A & JP 2003-193820 A & US 2003/093982 A1 | 1-23 |
| P, A | EP 1342494 A1 (NGK INSULATORS LTD.), 10 September, 2003 (10.09.03), Full text & AU 9234501 A & BR 0107762 A & CA 2396846 A1 & CN 1419469 T & JP 2002-219319 A & US 2003-041574 A1 & WO 02/41972 A1 | 1-23 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/14185

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

(See extra sheet.)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet(1)

The technical features of the inventions pertaining to Claims 1 to 8 relate to such a matter that the Young's modulus of the sealing parts of a honeycomb structure having a plurality of cells forming fluid flow passages partitioned by partition walls and in which one end parts of the specified cells are sealed by sealing members and the other end parts of the remaining cells are sealed by sealing members is lower than that of the partition walls.

The technical features of the inventions pertaining to Claims 9 to 16 relate to such a matter that the strength of the sealing parts of the honeycomb structure having the plurality of cells forming the fluid flow passages partitioned by the partition walls and in which one end parts of the specified cells are sealed by the sealing members and the other end parts of the remaining cells are sealed by the sealing members is lower than that of the partition walls.

The technical features of the inventions pertaining to Claims 17 to 23 relate to such a matter that the porosity of the sealing parts of the honeycomb structure having the plurality of cells forming the fluid flow passages partitioned by the partition walls and in which one end parts of the specified cells are sealed by the sealing members and the other end parts of the remaining cells are sealed by the sealing members is 97% or higher than that of the partition walls.

The honeycomb structure having the plurality of cells forming the fluid flow passages partitioned by the partition walls and in which one end parts of the specified cells are sealed by the sealing members and the other end parts of the remaining cells are sealed by the sealing members is still at the level of a prior art, and because there is no common matter pertaining to the inventions considered to be a special technical feature in the meaning of the second sentence of PCT Rule 13.2, any technical relation in the meaning of PCT Rule 13 cannot be found out between the inventions.

As a result, Claims 1 and 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 and 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17 and 18, 19, 20, 21, 22 and 23 do not fulfill the requirements of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ F01N3/022, B32B3/12, C04B38/00, B01D39/20 // B01D46/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ F01N3/022, B32B3/12, C04B38/00, B01D39/20, B01D46/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

| | |
|-------------|-----------|
| 日本国実用新案公報 | 1926-1996 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2003 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2003 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2003 |

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|---|
| X | US 5595581 A (NGK INSULATORS LTD.) 1997.01.21 請求の範囲、 実施例、表1、2 & JP 7-332064 A | 1-3, 6, 8-11, 14, 16-18, 21, 23 |
| Y | | 4, 5, 7, 12, 13, 15, 19, 20, 22 |
| X | EP 1184066 A1 (NGK INSULATORS LTD.) 2002.03.06 請求の範囲、 第3頁第28-31行 & WO 01/70373 A1 & CA 2374428 A & JP 2001-269585 A & AU 4111501 A & BR 1184066 A & CN 1365298 T | 17, 19-23 4, 5, 7, 12, 13, 15, 19, 20, 22 |
| Y | | |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06.01.04

国際調査報告の発送日

20.1.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中村 泰三

4Q

9040

電話番号 03-3581-1101 内線 3466

C (続き) . 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|--------------------------|
| X | EP 1251247 A1 (DENSO CORP.) 2002. 10. 23 請求の範囲、実施例、 表1、2 & JP 2003-3823 A1 & US 2002/189217 A1 | 1-6, 8-14, 16- 21, 23 |
| Y | | 7, 15, 22 |
| P X | US 2003/165662 A1 (HITACHI METALS LTD.) 2003. 09. 04 請求の範 囲、実施例、表1 & EP 1316686 A2 & JP 2003-236322 A & JP 2003-251198 A & JP 2003-269131 A & CN 1424493 A | 1-6, 8-14, 16- 21, 23 |
| A | JP 2002-239322 A (日立金属株式会社) 2002. 08. 27 全文 (ファミ リーなし) | 1-23 |
| A | JP 1-145378 A (化デソ株式会社) 1989. 06. 07 全文 (ファミリーな し) | 1-23 |
| A | 日本国実用新案登録出願59-146426号 (日本国実用新案登録出願公 開第61-62217号) の願書に最初に添付した明細書及び図面の内容を 撮影したマイクロフィルム (トヨタ自動車株式会社) 1986. 04. 26、実 用新案登録請求の範囲、実施例、第1、2図 (ファミリーなし) | 1-23 |
| P A | EP 1293241 A2 (HINO MOTORS LTD., HITACHI METALS LTD.) 2003. 03. 19 全文 & CN 1417455 A & JP 2003-126629 A & JP 2003-176709 A & JP 2003-193820 A & US 2003/093982 A1 | 1-23 |
| P A | EP 1342494 A1 (NGK INSULATORS LTD.) 2003. 09. 10 全文 & AU 9234501 A & BR 0107762 A & CA 2396846 A1 & CN 1419469 T & JP 2002-219319 A & US 2003/041574 A1 & WO 02/41972 A1 | 1-23 |

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT 17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

別紙参照

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

別紙

請求項1-8に係る発明の技術的特徴は、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体の前記目封じ部材のヤング率が、前記隔壁のヤング率よりも低いことである。

請求項9-16に係る発明の技術的特徴は、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体の前記目封じ部材の強度が、前記隔壁の強度よりも低いことである。

請求項17-23に係る発明の技術的特徴は、隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体の前記目封じ部材の気孔率が、前記隔壁の気孔率の97%以上であることである。

隔壁によって区画された流体の流路となる複数のセルを有し、所定の前記セルの一方の端部が目封じ部材により目封じされ、さらに残余の前記セルの他方の端部が目封じ部材により目封じされてなるハニカム構造体は、先行技術の域をせず、上記の発明の間にはPCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的特徴と考えられる共通の事項は存在しないから、上記の発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見いだすことはできない。

よって、請求の範囲1、2と3と4と5と6と7と8と9、10と11と12と13と14と15と16と17、18と19と20と21と22と23とは発明の単一性の要件を満たしていない。